

Rec'd

09 MAR 2004

10/527210

PCT/JP 2004/001674

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

16. 2. 2004

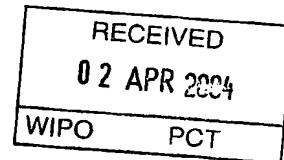
別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出願年月日 2003年 3月 5日  
Date of Application:

出願番号 特願 2003-058340  
Application Number:  
[ST. 10/C]: [JP 2003-058340]

出願人 東洋アルミニウム株式会社  
Applicant(s):

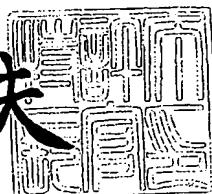


**PRIORITY  
DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2004年 3月 19日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特 2004-3022370

Best Available Copy

【書類名】 特許願  
【整理番号】 1030393  
【提出日】 平成15年 3月 5日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C09D 5/38  
B22F 1/00

## 【発明者】

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目 6 番 8 号 東洋アルミニウム株式会社内

【氏名】 長野 圭太

## 【特許出願人】

【識別番号】 399054321  
【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目 6 番 8 号  
【氏名又は名称】 東洋アルミニウム株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100064746

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 深見 久郎

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100085132

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 森田 俊雄

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100083703

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 仲村 義平

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100096781

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 堀井 豊

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100098316

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 野田 久登

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100109162

## 【弁理士】

【氏名又は名称】 酒井 將行

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008693

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9913654

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 アルミニウムフレーク顔料、その製造方法、それを用いた塗料  
およびインキ

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 基体粒子としてアルミニウムフレークを備えるアルミニウム  
フレーク顔料であって、前記アルミニウムフレークは、平均粒子径が $3 \sim 20 \mu m$   
の範囲にあり、最短径／最長径の平均値が0.6以上である、アルミニウムフ  
レーク顔料。

【請求項 2】 前記アルミニウムフレークのうち、直徑が $10 \mu m$ 以下のア  
ルミニウムフレークの平均アスペクト比が $8 \sim 20$ の範囲にある、請求項 1 に記  
載のアルミニウムフレーク顔料。

【請求項 3】 前記アルミニウムフレーク顔料は、リーフィングタイプのア  
ルミニウムフレーク顔料であって、前記アルミニウムフレークの表面における脂  
肪酸吸着量の平均値が $0.0008 \sim 0.002 \text{ mol e/cm}^2$ である、請求  
項 1 または 2 に記載のアルミニウムフレーク顔料。

【請求項 4】 請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のアルミニウムフレーク顔料  
の製造方法であって、

直径が $0.3 \text{ mm} \sim 1.5 \text{ mm}$ の範囲にある鋼を含む材質からなる球状メディ  
アを含有する磨碎メディアを備える磨碎装置を使用して、有機溶媒中でアルミニ  
ウム粉末をフレーク化するステップを備える、アルミニウムフレーク顔料の製造  
方法。

【請求項 5】 前記アルミニウム粉末は、平均粒子径 ( $D_{50 Al}$ ) が $1.0$   
 $\sim 10.0 \mu m$ の範囲にある、請求項 4 に記載のアルミニウムフレーク顔料の製  
造方法。

【請求項 6】 請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のアルミニウムフレーク顔料  
と、バインダと、を含有する、塗料。

【請求項 7】 請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のアルミニウムフレーク顔料  
と、バインダと、を含有する、インキ。

【発明の詳細な説明】

**【0001】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、新規なアルミニウムフレーク顔料に関する。さらに詳しくは、本発明は、高い光輝性を有する意匠性に優れたアルミニウムフレーク顔料に関する。

**【0002】**

また、本発明は、新規なアルミニウムフレーク顔料の製造方法に関する。さらに、本発明は、新規なアルミニウムフレーク顔料を含有する塗料に関する。そして、本発明は、新規なアルミニウムフレーク顔料を含有するインキに関する。

**【0003】****【従来の技術】**

一般に、アルミニウムフレーク顔料には、リーフィングタイプおよびノンリーフィングタイプがある。ここで、リーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料は、スチールボールなどの鋼製かつ球状の磨碎メディアを有するボルミルなどの磨碎装置を用い、ステアリン酸などの飽和脂肪酸などを粉碎助剤として、ミネラルスピリット、ソルベントナフサなどの有機溶媒中でアルミニウム粉末を湿式で磨碎することにより得られる。また、ノンリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料は、上記の飽和脂肪酸などの代わりにオレイン酸などの不飽和脂肪酸などを粉碎助剤として用いて、同様の磨碎をすることにより得られる。

**【0004】**

ここで、リーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料は、表面張力が小さいため、塗料に含有される溶剤やバインダとの親和性が弱い。そのため、塗膜の表層側に浮いてほぼ均一に配向し、これにより優れた金属感や素地隠蔽性を示すものである。

**【0005】**

一方、ノンリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料は、表面張力がそれほど小さくないため、塗料に含有される溶剤やバインダとの親和性が強い。そのため、塗膜の内部にほぼ均一に配向した状態で分布し、これにより塗膜に金属感を与え、所謂メタリック調の意匠を示すものである。

**【0006】**

そして、塗膜のメタリック感は、輝度感、明度、キラキラ感、などの組合せで視覚的に認識されるものであるが、従来から輝度の高い塗膜を望む傾向が強い。特に最近では飲料缶などのタルク缶への塗料顔料として、高い輝度感を有するアルミニウムフレーク顔料への要求が高い。一般に、塗膜の輝度とアルミニウムフレーク顔料の平均粒子径との間には相関関係があり、平均粒子径の大きいもの程輝度が高い。

#### 【0007】

一方で、アルミニウムフレーク顔料の平均粒子径が大きい場合には、塗膜形成時にアルミニウムフレーク顔料の配向が乱れる傾向があり、また、アルミニウムフレーク顔料が塗膜から突出して塗膜の表面にヅツが見られる場合があり、さらに、塗膜のキラキラ感が強くなりすぎて意匠的に好ましくない場合もある。

#### 【0008】

そのため、平均粒子径が小さく、同時に輝度の高いアルミニウムフレーク顔料の開発が望まれ、各方面で多くの開発努力がなされている。

#### 【0009】

リーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料では、たとえばクロムメッキ調の仕上がり感に代表される高反射率を示す塗膜を形成できるものとして、種々の開発がなされており、たとえば、厚さ $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ 、平均粒子径 $1 \sim 60 \mu\text{m}$ のリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料を用いた、光輝性の強い塗料などが開示されている（たとえば、特許文献1参照。）。

#### 【0010】

また、微粒子径のリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料を用いた塗料に関する技術も開示されている（たとえば、特許文献2参照。）。この塗料は、蒸着膜と同程度の光輝性を有する金属感を持ち、ヘッドライト、シグナルランプ、テールランプなどの自動車標識灯のリフレクターなどに好適であると記載されている。

#### 【0011】

そして、ノンリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料では、たとえば、（A）塗膜形成樹脂100固形重量部と、（B）平均粒子径（D50）が20

± $5\text{ }\mu\text{m}$ の範囲にあり、粒子平均厚み（t）が $0.5\sim1\text{ }\mu\text{m}$ の範囲にあり、ロジンーラムラー線図における勾配（n）が2.7以上であるアルミニウムフレーク顔料0.1~3.0重量部と、を含有するメタリック顔料組成物によって、強い光輝感と優れた外観を同時に塗膜に付与できると開示されている（たとえば、特許文献3参照。）。

#### 【0012】

また、平均厚み $0.2\sim0.7\text{ }\mu\text{m}$ 、平均粒子径 $4\sim20\text{ }\mu\text{m}$ 、アスペクト比 $1.5\sim5.0$ 、及び均等数（n） $\geq2.4$ の、輝度が高く、耐サーキュレーション性に富んだアルミニウムフレーク顔料が開示されている（たとえば、特許文献4参照。）。

#### 【0013】

しかし、これらの従来のリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料やノンリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料を用いた塗料であっても、なお平均粒子径が小さく、同時に輝度の高いアルミニウムフレーク顔料に対する要求が十分に満たされたわけではない。

#### 【0014】

##### 【特許文献1】

特開2001-240808号公報

#### 【0015】

##### 【特許文献2】

特開2001-81359号公報

#### 【0016】

##### 【特許文献3】

特開平8-170034号公報

#### 【0017】

##### 【特許文献4】

特開平11-152423号公報

#### 【0018】

##### 【発明が解決しようとする課題】

上記の現状に基づき、本発明の主な課題は、平均粒子径が小さく、同時に高い光輝感、輝度を有するアルミニウムフレーク顔料を提供することである。また、本発明の別の課題は、平均粒子径が小さく、同時に高い光輝感、輝度を有するアルミニウムフレーク顔料の製造方法を提供することである。

#### 【0019】

さらに、本発明の他の課題は、高い光輝感、輝度を示す塗料を提供することである。そして、本発明のもう一つの課題は、高い光輝感、輝度を示すインキを提供することである。

#### 【0020】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明者は、上記の課題を解決するため、アルミニウムフレーク顔料の形状、表面平滑性、平均粒子径、粒子径分布、平均厚み、厚み分布、アスペクト比などと、当該アルミニウムフレーク顔料を含有する塗膜の輝度との関係を詳細に検討した。

#### 【0021】

その過程で、本発明者は、従来公知の技術に基づいて、アルミニウムフレーク顔料の平均粒子径やアスペクト比を一定範囲に調整したり、あるいは、ロジンーラムラー線図による均等数（n）を規制したりして、粒子径分布のシャープなアルミニウムフレーク顔料を使用しても、アルミニウムフレークの粒子形状の最短径／最長径の平均値が0.6以上でなければ、輝度は低下することを見出した。

#### 【0022】

そこで、本発明者は、従来にない新しい着想に基づき、特定の形状を有するリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料および／またはノンリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料を用いたところ、この特定の形状を有するアルミニウムフレーク顔料を含有する塗料から得られる塗膜は、高い光輝感、輝度を有することを見出した。

#### 【0023】

また、本発明者は、この特定の形状を有するアルミニウムフレーク顔料を得るために、特定の材質、形状、直径を有する磨碎メディアを備える磨碎装置を使

用して、有機溶媒中で特定の平均粒子径のアルミニウム粉末を磨碎してフレーク化すればよいことを見出し、本発明を完成した。

#### 【0024】

すなわち、本発明のアルミニウムフレーク顔料は、基体粒子としてアルミニウムフレークを備えるアルミニウムフレーク顔料であって、このアルミニウムフレークは、平均粒子径が $3 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲にあり、最短径／最長径の平均値が0.6以上である、アルミニウムフレーク顔料である。

#### 【0025】

ここで、このアルミニウムフレークのうち、直径が $10 \mu\text{m}$ 以下のアルミニウムフレークの平均アスペクト比は $8 \sim 20$ の範囲にあることが好ましい。

#### 【0026】

また、このアルミニウムフレーク顔料は、リーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料であって、このアルミニウムフレークの表面における脂肪酸吸着量の平均値は $0.0008 \sim 0.002 \text{ mole/cm}^2$ であることが望ましい。

#### 【0027】

そして、本発明のアルミニウムフレーク顔料の製造方法は、上記のアルミニウムフレーク顔料の製造方法であって、直径が $0.3 \text{ mm} \sim 1.5 \text{ mm}$ の範囲にある鋼を含む材質からなる球状メディアを含有する磨碎メディアを備える磨碎装置を使用して、有機溶媒中でアルミニウム粉末をフレーク化するステップを備える、アルミニウムフレーク顔料の製造方法である。

#### 【0028】

ここで、このアルミニウム粉末は、平均粒子径( $D_{50Al}$ )が $1.0 \sim 10.0 \mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。

#### 【0029】

そして、本発明の塗料は、上記のアルミニウムフレーク顔料と、バインダと、を含有する、塗料である。

#### 【0030】

また、本発明のインキは、上記のアルミニウムフレーク顔料と、バインダと、を含有する、インキである。

**【0031】****【発明の実施の形態】**

以下、実施の形態を示して本発明をより詳細に説明する。

**【0032】****<アルミニウムフレーク顔料>**

本発明のアルミニウムフレーク顔料は、平均粒子径と最短径／最長径の平均値が特定の範囲であるアルミニウムフレーク顔料である。

**【0033】**

ここで、本発明のアルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレークは、平均粒子径、水面拡散面積およびリーフィング値などの制御が簡便であることから、純粹なアルミニウム金属を材質とするアルミニウムフレークであることが好ましい。もっとも、本発明のアルミニウムフレーク顔料は、アルミニウムと他の金属との合金を材質とするアルミニウムフレークを基体粒子として備えてもよく、多少の不純物を含むアルミニウムフレークを基体粒子として備えてよい。

**【0034】**

本発明のアルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク粒子の平均粒子径は、 $3 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましく、 $5 \sim 15 \mu\text{m}$ の範囲にあればさらに好ましい。この平均粒子径が $3 \mu\text{m}$ 未満の場合には、塗膜の輝度が不足する傾向があり、この平均粒子径が $20 \mu\text{m}$ を超える場合には、塗膜のキラキラ感が強調されすぎて好ましくない場合がある。

**【0035】**

また、本発明のアルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク粒子は最短径／最長径の平均値が $0.6$ 以上であることが必要であり、 $0.7$ 以上であることが好ましい。この最短径／最長径の平均値が $0.6$ 未満の場合は十分な輝度が得られない傾向がある。この最短径／最長径の平均値は $0.6$ 以上であれば上限は問わないが、当然のことながら $1$ を超えることはない。

**【0036】**

ここで、アルミニウムフレーク粒子の最短径とは、アルミニウムフレーク粒子

の厚みとは異なる概念である。アルミニウムフレーク粒子の最短径とは、アルミニウムフレークの平面状または曲面状の部分の最短径を意味する概念である。

#### 【0037】

また、本発明のアルミニウムフレーク顔料では、アルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク粒子のうち、直径が $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下のアルミニウムフレーク粒子の平均アスペクト比が8～20の範囲にあることが好ましく、9～15の範囲にあることがさらに好ましい。この平均アスペクト比が8未満の場合は微細粒子の十分なフレーク化がなされておらず、その結果塗膜に渦りが発生し、塗膜の輝度が低下し、意匠的に劣ったものとなる傾向がある。この平均アスペクト比が20を超えると、塗料作製時のサーキュレーションにおいてアルミニウムフレーク粒子の折曲がりや破損が生じ、いわゆる耐サーキュレーション性が低下する傾向がある。

#### 【0038】

##### <脂肪酸吸着量>

また、本発明のアルミニウムフレーク顔料がリーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料の場合は、アルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク粒子の表面における脂肪酸吸着量の平均値が0.0008～0.002 mole/cm<sup>2</sup>の範囲であることが好ましい。この脂肪酸吸着量の平均値が0.0008未満の場合は安定したリーフィング性が得られず、輝度が低下する傾向がある。逆にこの脂肪酸吸着量の平均値が0.002を超える場合は十分なリーフィング値が得られず、この場合も同様に輝度が低下する傾向がある。

#### 【0039】

##### <アルミニウムフレーク顔料の製造方法>

本発明のアルミニウムフレーク顔料の製造方法は、上記のアルミニウムフレーク顔料の製造方法であって、磨碎メディアを備える磨碎装置を使用して、有機溶媒中でアルミニウム粉末をフレーク化するステップを備える、アルミニウムフレーク顔料の製造方法である。

#### 【0040】

##### <磨碎メディアの形状と直径>

本発明に用いる磨碎メディアの材質は、比重と経済性の面から、ステンレスなどの鋼を含有する材質からなる磨碎メディアが好ましい。さらに、本発明に用いる磨碎メディアは、直径が0.3mm～1.5mmの範囲にある球状メディアを含有することが好ましい。ただし、この磨碎メディアは、球状メディアとはいっても真球状メディアである必要は無く、実質的に球状メディアであれば良い。また、この磨碎メディアとして、直径が0.5～1.0mmの範囲にある磨碎メディアを含有していれば特に好ましい。

#### 【0041】

本発明者は、通常の磨碎プロセスではフレーク化されない微細なアルミニウム粉末をフレーク状に磨碎するためには、この磨碎メディアの直径を0.3mm～1.5mmの範囲まで小さくすることが効果的であることを見出した。

#### 【0042】

そして、本発明者は、分断を伴ってフレーク化されたアルミニウムフレーク粒子は必然的に粒子の外周部がギザギザ形状となっているため、輝度の低下をもたらすことを見出した。一方、本発明者は、粒子の分断を伴わず、単にフレーク化されたアルミニウムフレーク粒子の外周部は滑らかな曲線状であり、高輝度を示すアルミニウムフレーク粒子の必須条件を満たすことも見出した。

#### 【0043】

なお、磨碎とは一般的にはフレーク化を意味し、粒子の分断の有無を問わない場合が多い。しかし、本明細書では磨碎とは、実質的に粒子の分断を伴わずにアルミニウム粉末をフレーク化するプロセスを言うものとする。

#### 【0044】

ここで、直径が1.5mmを超える磨碎メディアが大半を占めると、磨碎メディア間に微細なアルミニウム粉末がトラップされ、当該アルミニウム粉末は磨碎されにくくなり効率よくフレーク化されなくなる傾向がある。また、磨碎されるアルミニウム粉末にとっては、1回のコンタクトにより磨碎メディアからアルミニウム粉末に与えられるエネルギーが大きくなりすぎて最短径／最長径の平均値が0.7未満となりやすい傾向がある。一方、直径が0.3mm未満の磨碎メディアが大半を占める場合は、磨碎メディアの重量が軽すぎて磨碎力が劣り、磨碎

時間がかかりすぎて、実質上アルミニウム粉末を磨碎できない傾向がある。

#### 【0045】

なお、この磨碎メディアとしては、径の異なる二種以上の磨碎メディアを混合して使用してもよい。また、直径が1.5 mmを超える磨碎メディアが、本発明に用いる磨碎装置の中に含まれていてもよい。すなわち、本発明の製造方法においては、直径が0.3～1.5 mmの磨碎メディアを含有する磨碎メディアを用いてアルミニウム粉末をフレーク化することが重要である。直径が0.3～1.5 mmの磨碎メディアの量は、磨碎装置に投入する原料アルミニウム粉末の量に従って変化させればよい。

#### 【0046】

##### <原料アルミニウム粉末の平均粒子径>

本発明に用いる原料アルミニウム粉末の平均粒子径 ( $D_{50Al}$ ) は、1.0～10.0  $\mu m$  の範囲にあることが好ましく、1.0～6.0  $\mu m$  の範囲にあればさらに好ましい。

#### 【0047】

この $D_{50Al}$ が10.0  $\mu m$ を超えると、磨碎後のアルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレークの直径が大きくなり、そのため、塗膜の形成時にアルミニウムフレーク顔料の配向が乱れたり、また、アルミニウムフレーク顔料の突き出しにより塗膜表面にヅツが見られたり、さらに、塗膜のキラキラ感が強すぎて用途によっては意匠的に好まれない場合がある。一方で、この $D_{50Al}$ が1.0  $\mu m$ 未満の場合には、直径が0.3～1.5 mmの範囲にある磨碎メディアを含有していても効率よくアルミニウム粉末をフレーク化できず、十分な塗膜輝度が得られない傾向がある。

#### 【0048】

##### <原料アルミニウム粉末の平均粒子径と磨碎メディアの直径との比>

本発明の製造方法では、原料アルミニウム粉末の平均粒子径 ( $D_{50Al}$ ) と、磨碎メディアの直径 ( $D_B$ ) との比 ( $D_{50Al}/D_B$ ) が0.001～0.02の範囲にあることが好ましく、0.0015～0.008の範囲にあればさらに好ましい。この $D_{50Al}/D_B$ の値が前記の範囲にあることにより、微細なアル

ミニウム粉末をフレーク化する効果がさらに増大するからである。

#### 【0049】

この $D_{50Al}/D_B$ の値が0.001未満の場合は、磨碎メディアの間隙が原料アルミニウム粉末に比較して大きすぎるため、原料アルミニウム粉末が効率よくフレーク化されにくい傾向がある。一方で、 $D_{50Al}/D_B$ の値が0.02を超える場合には、原料アルミニウム粉末に対して磨碎メディアが小さすぎるため、個々の磨碎メディアの質量と相關関係のある磨碎力が不足して原料アルミニウム粉末を効率よく磨碎できず、フレーク化されないアルミニウムの微粉が残存して塗膜の輝度が低下する傾向がある。

#### 【0050】

＜原料アルミニウム粉末の質量と有機溶媒の体積との比＞

本発明の製造方法では、原料アルミニウム粉末の質量( $W_{Al}$ (kg))と、有機溶媒の体積( $W_{sol}$ (L))との比( $W_{Al}/W_{sol}$ )が0.1～0.3の範囲にあることが好ましく、0.14～0.20の範囲にあればさらに好ましい。 $W_{Al}/W_{sol}$ の値が0.1未満では、磨碎時のスラリー粘度が低くなるため原料アルミニウム粉末に泳ぎが発生し、原料アルミニウム粉末を均一に磨碎できない傾向がある。一方で、 $W_{Al}/W_{sol}$ の値が0.3を超えると、磨碎時のスラリーの粘度が高くなりすぎて磨碎メディアの動きが抑制され、原料アルミニウム粉末を均一にフレーク化できない傾向がある。

#### 【0051】

＜磨碎装置としてボールミルを使用する場合の回転数＞

本発明の製造方法では、特に磨碎装置の種類を限定せず、従来公知の磨碎装置を好適に使用できるが、たとえば、内部に回転アームを備えたアトライター型の磨碎装置や、円筒状のボールミルなどを好ましく用いることができる。また、前記の磨碎装置の中でも、円筒状のボールミルを用いることが、品質や生産性の面から特に好ましい。

#### 【0052】

なお、本発明の製造方法において、ボールミルを用いる場合には、ボールミルの回転数を臨界回転数の95%以下とすることが好ましい。ここで言う臨界回転

数とは、それ以上回転数を上げると、ポールがポールミル内壁に遠心力により固定される回転数をいい、以下の式（1）で示される。

$$n = 1 / (2\pi) \times (g/r)^{1/2} \dots (1)$$

（なお、式（1）において、nは回転数（r p m）、gは重力加速度（3, 528, 000 cm/m<sup>2</sup>）、rはポールミル半径（cm）を表わす。）

ポールミルの回転数が臨界回転数の95%を超える場合には、磨碎効果の中でも粉碎効果が強くなり、十分なフレーク化ができず、逆に大きなフレーク粒子が分断されて極微細粒子ができるため、塗膜の輝度が低下する傾向がある。

#### 【0053】

##### <その他の磨碎条件>

本発明の製造方法において、磨碎は磨碎助剤の存在下で行うことが好ましい。磨碎助剤としては、特に限定されず、従来公知のものを使用可能であるが、たとえば、オレイン酸、ステアリン酸、などの脂肪酸や、脂肪族アミン、脂肪族アミド、脂肪族アルコール、エステル化合物などを好適に使用可能である。

#### 【0054】

前記の磨碎助剤は、アルミニウムフレーク顔料表面の不必要的酸化を抑制し、光沢を改善する効果を有する。磨碎時の磨碎助剤の添加量は、原料アルミニウム粉末100質量部に対し、0.1～20質量部の範囲が好ましく、0.5～10質量部の範囲であればさらに好ましい。磨碎助剤の添加量が0.1質量部未満では、アルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレークの凝集が生じて、アルミニウムフレーク顔料の表面光沢が低下する恐れがあり、一方で磨碎助剤の添加量が20質量部を超えると、塗料の物性が低下する恐れがある。

#### 【0055】

アルミニウムフレーク顔料がリーフィングタイプの場合は、ステアリン酸などの高級飽和脂肪酸を使用するが、磨碎時の温度コントロールが重要である。磨碎時のミル内温度を20～45℃に保つことにより、アルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク表面の脂肪酸の吸着量を0.0008～0.0020 mole/cm<sup>2</sup>に保つことができる。磨碎温度が20℃未満では吸着量が増加する傾向があり、45℃を超えると逆に減少してしまう傾向がある。

**【0056】**

本発明の製造方法では、磨碎時の原料アルミニウム粉末の量と磨碎メディアの量との比は、20～200の範囲にあることが好ましい。前記の比が20未満では生産性が低下する傾向があり、前記の比が200を超えると磨碎時間が非常に長くなるとともに、磨碎中にスラリー粘度が上がりすぎて効率よく磨碎できない場合がある。

**【0057】**

本発明の製造方法では、磨碎時の有機溶媒は、特に限定されず、従来公知のものを使用可能であるが、たとえば、ミネラルスピリット、ソルベントナフサなどの炭化水素系溶剤や、アルコール系、エーテル系、エステル系の溶剤などが使用できる。一般的には、磨碎時の溶媒への引火性などの安全上の問題を配慮して、高沸点の炭化水素系溶剤が好適に使用される。

**【0058】****<塗料およびインキ>**

本発明のアルミニウムフレーク顔料は、塗料、インキ、ゴム組成物、プラスチック組成物、エラストマー組成物などに配合し、それらの組成物などに高い輝度、光輝感を与えることができる。

**【0059】**

本発明の塗料およびインキは、本発明のアルミニウムフレーク顔料と、バインダと、を含有する。また、本発明の塗料およびインキは、本発明のアルミニウムフレーク顔料と、バインダと、溶剤と、を含有してもよい。さらに、本発明の塗料は、粉体塗料であってもよい。

**【0060】**

本発明の塗料およびインキには、本発明のアルミニウムフレーク顔料を0.1～30質量%の範囲で配合することが好ましい。また、本発明の塗料およびインキには、必要に応じて、他の着色顔料、染料、各種添加剤などを加えることができる。

**【0061】**

本発明の塗料およびインキに用いる溶剤としては、特に限定されず、従来公知

の用材を使用できるが、たとえばミネラルスピリット、ヘキサン、ヘプタン、シクロヘキサン、オクタンなどの脂肪族炭化水素、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素、クロルベンゼン、トリクロルベンゼン、パークロルエチレン、トリクロルエチレンなどのハロゲン化炭化水素、メタノール、エタノール、n-プロピルアルコール、n-ブタノールなどのアルコール類、n-プロパン、2-ブタノンなどのケトン類、酢酸エチル、酢酸プロピルなどのエステル類、テトラヒドロフラン、ジエチルエーテル、エチルプロピルエーテルなどのエーテル類、その他テレピン油などが挙げられる。また、当該溶剤は、単独で、あるいは二種以上を混合して使用することができる。

#### 【0062】

また、上記の説明は、溶剤が有機溶剤の場合であるが、本発明の塗料およびインキに用いる溶剤は、水であっても良い。この場合、本発明のアルミニウムフレーク顔料を、樹脂組成物やリン系化合物で被覆して、その上で、バインダと、水と、配合することにより、水性の塗料やインキとしても使用可能である。

#### 【0063】

本発明の塗料およびインキに用いるバインダとしては特に限定されず、従来公知の塗膜形成用樹脂などを好適に用いることができるが、たとえば、アクリル系樹脂、ポリエステル系樹脂、アルキド樹脂、フッ素樹脂などが挙げられ、アミノ樹脂やブロックポリイソシアネート樹脂などの架橋剤と併せて使用することもできる。これらの樹脂の他にも、自然乾燥により硬化するラッカー、2液型ポリウレタン樹脂やシリコーン樹脂なども使用することができる。本発明のインキ組成物に用いるバインダの場合には、これらの他にも、あまに油、ひまし油の油類、フェノール樹脂、ロジンなどの天然樹脂なども適宜必要に応じて配合できる。また、当該バインダは、単独で、あるいは二種以上を混合して使用することができる。

#### 【0064】

また、本発明の塗料およびインキに添加することのできる着色顔料としては、特に限定されず、従来公知の着色顔料を本発明の特性を損なわない程度に添加することができるが、たとえばキナクリドンレッド、フタロシアニンブルー、フタ

ロシアニングリーン、イソインドリノンイエロー、カーボンブラック、ペリレン、アゾレーキなどの有機顔料、酸化鉄、酸化チタン、コバルトブルー、亜鉛華、群青、酸化クロム、マイカ、黄鉛などの無機顔料などが好適に使用できる。また、当該着色顔料は、一種に限らず二種以上を混合してあるいは同時に添加して使用することもできる。

#### 【0065】

また、本発明の塗料およびインキには、これらその他、紫外線吸収剤、増粘剤、静電気除去剤、分散剤、酸化防止剤、艶だし剤、界面活性剤、合成保存剤、潤滑剤、可塑剤、硬化剤、フィラー（強化剤）、ワックスなどを必要に応じて添加してもよい。

#### 【0066】

##### <塗料の塗装方法およびインキの印刷方法>

本発明の塗料を塗装する方法としては、従来公知の方法が採用でき、刷毛塗り法、スプレー法、ドクターブレード法、ロールコーティング法、バーコーター法などが挙げられる。また、本発明のインキを使用して印刷する方法としては、グラビア印刷などの凹版印刷、オフセット印刷（または転写印刷ともいう）、スクリーン印刷、などの凸版印刷法、平版印刷法などが挙げられる。

#### 【0067】

また、本発明の塗料およびインキの被塗物としての基材は特に限定されず、塗料やインキを塗布できる物品であれば好適に用いることができるが、たとえば、自動車、自動二輪車、自転車、その他車両等のボディおよびその部品、カメラ・ビデオカメラなどの光学機器、OA機器、スポーツ用品、化粧品、飲料缶などの容器、ラジカセやCDプレーヤー等の音響製品、掃除機・電話機・テレビなどの家庭用品などが挙げられる。

#### 【0068】

また、当該基材の材質も、特に限定されず、従来公知のものを用いることができるが、たとえば、セラミックス、ガラス、セメント、コンクリートなどの無機材料、天然樹脂、合成樹脂などのプラスチック材料、金属、木材、紙などが挙げられる。金属を材質とする基板の具体例としては、鉄、銅、アルミニウム、錫、

亜鉛など、これらの合金および鋳造物を材質とする基板が挙げられる。なお、これらの金属を材質とする基板は、あらかじめ磷酸塩、クロム酸塩などで化成処理されていることが好ましい。

#### 【0069】

また、上記の基板の材質に適用できるプラスチック材料は特に限定されず、従来用いられているプラスチック組成物を好適に採用できる。たとえば、ポリエスチル樹脂、ナイロン樹脂、ポリフェニレンオキシド樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、エポキシ樹脂、ABS樹脂、アクリル樹脂、ポリカーボネート、ポリオレフィン系樹脂、エチレン-プロピレンコポリマー、AES樹脂、AS樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアミド系樹脂、PET、PBT、ポリアリレート、ポリアセタール、ポリフェニレンエーテル、ポリメチルベンテン、ポリフェニレンスルフィド、ポリブタジエン、ポリエーテルサルホン、ポリスルホンなど、またはこれらの共重合体、混合物、変性物などを含むプラスチック組成物を材質とする基板が挙げられる。これらは1種または2種以上を用いることができる。

#### 【0070】

本発明の塗料の態様により必要なときは、下地塗膜、塗膜、および上塗り塗膜などを順次塗装してもよい。この場合には、各塗膜を塗装し硬化後に次の塗膜を塗装してもよいし、いわゆるウェットオンウェット塗装により各塗膜を塗装した後、硬化させずに次の塗膜を塗装してもよい。しかしながら、良好な鏡面様の光輝性をもつ塗膜を得るために、下地塗膜を塗装し硬化後、メタリック塗膜を塗装することが好ましい。各塗膜の塗料の硬化方法は、たとえば熱硬化であってもよいし、常温硬化であってもよい。

#### 【0071】

この場合、下地塗膜の厚みは、特に限定されるものではないが、一般的な実施形態においては、 $10 \sim 200 \mu\text{m}$ の範囲であることが好ましい。また、塗膜の厚みは、特に限定されるものではないが、一般的な実施形態においては、 $1 \sim 100 \mu\text{m}$ の範囲であることが好ましい。上塗り塗膜の厚みは、特に限定されるものではないが、一般的な態様においては、 $5 \sim 300 \mu\text{m}$ の範囲であることが好

ましい。

### 【0072】

#### 【実施例】

以下、実施例を挙げて本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

### 【0073】

#### ＜実施例1＞

直径500mm、長さ180mmの円筒状ボールミルの中に、磨碎メディアとして直径が0.7mmの鋼球を40kg、平均粒子径が4.6μmの原料アルミニウム粉末を800g、有機溶媒としてミネラルスピリットを4L、磨碎助剤としてオレイン酸を80g、それぞれ投入し、回転数41rpm（臨界回転数の68%）で13時間磨碎した。磨碎中の温度はウォータジャケットにより20℃～40℃に保った。

### 【0074】

磨碎工程終了後、ボールミル内のスラリーをミネラルスピリットで洗い出し、150メッシュ、350メッシュ、400メッシュの振動スクリーンに順次かけ、通過したスラリーをパンフィルターで固液分離した。その後得られたフィルターケーキを（不揮発分85%）をニーダーミキサー内に移し、1時間混練してアルミニウムフレーク顔料（不揮発分80%）を得た。

### 【0075】

#### ＜実施例2～6および比較例1～3＞

実施例1で使用したボールミルを用い、製造条件を表1に示すように変化させ磨碎工程に供した。磨碎終了後は実施例1と同様の方法でアルミニウムフレーク顔料（不揮発分80%）を得た。

### 【0076】

【表1】

	W <sub>A</sub> (kg)	D50 <sub>A</sub> (μm)	ミネラル 粉末 スピリット W <sub>soi</sub> (%)	製造条件							
				磨碎助剤 助剤量 (g)	回転数 (rpm/ 対臨界%)	磨碎 時間 (時間)	磨碎 温度 (℃)	鋼球 量 (kg)	D <sub>B</sub> (mm)	W <sub>A</sub> /W <sub>soi</sub>	
実施例1	0.8	4.6	4.0	オレイン酸	80	41/68	13	30	40	0.7	0.0066
実施例2	1.0	3.5	5.0	ステアリン酸	190	35/80	10	30	50	1.2	0.0029
実施例3	1.0	3.5	5.0	ステアリン酸	190	35/80	10	18	50	1.2	0.0029
実施例4	1.0	1.7	4.2	ステアリン酸	190	35/80	12	35	50	1.2	0.233
実施例5	1.0	4.5	4.0	ステアリン酸	190	40/67	10.5	30	40	0.7	0.0064
実施例6	1.0	4.5	4.0	ステアリン酸	190	50/83	16	30	40	0.5	0.0090
比較例1	0.8	3.8	4.6	オレイン酸	80	49/82	10	30	40	1.2	0.0032
比較例2	3.0	10	2.0	ステアリン酸	115	29/88	8.0	35	50	6.4	0.0016
比較例3	1.5	15	1.9	オレイン酸	80	40/100	6.5	30	50	6.4	0.0023
										0.789	

【0077】

&lt;塗板の作製&gt;

実施例1～6および比較例1～3で得られたアルミニウムフレーク顔料（不揮

発分80%) 5.0gを200mlのPPカップに採取し、トルエン5.0gを加えて30分以上放置し、その後完全に分散するまでガラス棒で攪拌した。分散後メタリック塗料用ワニスM6301-45(大日本インキ化学工業製、アルキド樹脂)40.0gを加え、ホモディスパーにて800rpmで10分間分散し、塗料を調整した。

#### 【0078】

実施例1～6および比較例1～3で得られたアルミニウムフレーク顔料をそれぞれ含有する上記の塗料を、バーコーター10番でブリキ板上に塗布した。

#### 【0079】

その後、140℃にて10分間乾燥させ、実施例1～6および比較例1～3で得られたアルミニウムフレーク顔料をそれぞれ含有する塗板を得た。

#### 【0080】

##### <性能評価>

実施例1～6および比較例1～3で得られたアルミニウムフレーク顔料の平均粒径、最短径／最長径の平均値、直径10μm以下の粒子の平均アスペクト比を測定した。また、リーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料については表面に吸着している脂肪酸量を測定した。さらに、アルミニウムフレーク顔料を含有する上記の塗板の塗装面に150×100×2mmのガラス板を敷き、輝度(IV値)を、アルコープLMR-200(関西ペイント(株)製)により測定した。これらの結果を表2に示す。

#### 【0081】

【表2】

性能評価				
フレークの平均 粒子径(μm)	最短径/ 最長径	10 μm以下の粒子の 平均アスペクト比	吸着 脂肪酸量 (mol/cm <sup>2</sup> )	塗膜 輝度 IV値
13.1	0.69	9.0	0.00045	183
12.4	0.78	10.4	0.00135	239
12.4	0.78	9.0	0.00290	180
6.9	0.72	7.5	0.00119	229
12.1	0.65	9.2	0.00121	243
11.9	0.62	9.8	0.00120	250
13.4	0.57	6.6	0.00037	143
14.6	0.52	5.2	0.00135	160
23.9	0.49	5.4	0.00054	103

## 【0082】

なお、表2の中の数字で、原料アルミニウム粉末およびアルミニウムフレーク顔料の平均粒子径については、レーザー回折式粒度分布測定装置（ハネウェル（Honeywell）社製、マイクロトラック HRA）にて、以下の条件で測定した。

## 【0083】

## (i) 原料アルミニウム粉末の場合

原料アルミニウム粉末0.5 gをヘキサメタリン酸0.01 gを混合して、ガラス棒で攪拌し、測定系内循環水に投入し、超音波で2分間分散させた後、測定した。

## 【0084】

## (ii) アルミニウムフレーク顔料の場合

アルミニウムフレーク顔料（不揮発分80%）0.5 g、トルエン11.0 gをガラス棒で攪拌し、測定系内循環溶媒（エタノール/IPA）に投入し、超音波で30秒間分散させた後、測定した。

## 【0085】

また、アルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク粒子のうち直径が10 μm以下のアルミニウムフレークの平均アスペクト比は、上記

の塗板を1.5cm角に切断し、切断塗板が試料表面に垂直になるようエポキシ樹脂に埋め込んだ試料表面を平滑に研磨し、観察試料とし、デジタルHDマイクロスコープVH-7000（KEYENCE製）にて塗膜断面中のアルミニウムフレークの状態を観察することにより求めた。すなわち、観察したアルミニウムフレークを画面上で、Image-Pro PLUS ver. 4 (MEDIA CYBERNETICS社製) を用い、それぞれのアルミニウムフレークの厚みdと長径Dを測定した。この時、長径Dが $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粒子数は50個以上とし、採用した50個以上の全てのアルミニウムフレークのアスペクト比(D/d)を計算し、その平均値を、アルミニウムフレーク顔料の基体粒子であるアルミニウムフレーク粒子のうち直径が $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下のアルミニウムフレークの平均アスペクト比とした。

#### 【0086】

なお、断面から観察される長径Dは必ずしもアルミニウムフレークの個々の長径を表したものとは言えず、それをもとに算出された個々のアルミニウムフレークのアスペクト比は多少の誤差を含んではいるが、測定個数を50個以上することで、これらの個々のアスペクト比の平均値を、平均アスペクト比として定義した。

#### 【0087】

また、最短径/最長径の平均値は、アルミニウムフレーク顔料（不揮発分80%）をアセトンで洗浄しパウダー化した後、走査型電子顕微鏡（SEM S-2300日立製作所製）で観察し、観察したアルミニウムフレークを画面上でImage-Pro PLUS ver. 4 (MEDIA CYBERNETICS社製) を用い、一個のアルミニウムフレークで最短径と最長径を測定し、50個の粒子の平均値で定義した。

#### 【0088】

また、アルミニウムフレーク表面に吸着した脂肪酸量は、アルミニウムフレーク顔料（不揮発分80%）をアセトンで洗浄しパウダー化した後、密閉された加熱筒（ADVANTEC製）中で350℃で焼成し、アルミニウムフレーク表面に吸着している有機物の燃焼により発生したCO<sub>2</sub>量をINTEGRATED G

AS ANALYZE URA-107（島津製作所製）により測定して求めたCO<sub>2</sub>を、既測定のステアリン酸検量線により換算しアルミニウムフレークの比表面積で除することにより求めた。

#### 【0089】

ここで、アルミニウムフレークの比表面積はアルミニウムフレーク顔料（不揮発分80%）をアセトンで洗浄しパウダー化した後、比表面積測定装置（BET法 Flow Sorb II 2300 島津製作所）によって測定した。

上記の評価結果の表2で示されるように、本発明で開示されたアルミニウムフレーク顔料を含む塗料を用いた塗膜は、比較例と比べて、著しく輝度が高いことが分かる。

#### 【0090】

今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

#### 【0091】

##### 【発明の効果】

上記の評価結果より、本発明のアルミニウムフレーク顔料は、平均粒子径が小さい場合にも輝度が高いアルミニウムフレーク顔料であり、意匠性に非常に優れたアルミニウムフレーク顔料であるといえる。すなわち、本発明のアルミニウムフレーク顔料は、平均粒子径が小さく、同時に高い光輝感、輝度を有するアルミニウムフレーク顔料であるといえる。

#### 【0092】

また、本発明のアルミニウムフレーク顔料の製造方法は、直径が0.3mm～1.5mmの範囲にある、鋼製磨碎メディアを含有する磨碎装置を用いることにより、微細なアルミニウム粉末も円盤状にフレーク化することが可能である。そのため、得られたアルミニウムフレーク顔料は、平均粒子径が小さく、同時に高い光輝感、輝度を有する。すなわち、本発明のアルミニウムフレーク顔料の製造方法は、平均粒子径が小さく、同時に高い光輝感、輝度を有するアルミニウムフ

レーク顔料の製造方法である。

【0093】

さらに、本発明の塗料は、高い光輝感、輝度を示す塗料である。そして、本発明のインキは、高い光輝感、輝度を示すインキである。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 平均粒子径が小さく、同時に高い光輝感、輝度を有するアルミニウムフレーク顔料を提供する。

【解決手段】 基体粒子としてアルミニウムフレークを備えるアルミニウムフレーク顔料であって、このアルミニウムフレークは、平均粒子径が $3 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲にあり、最短径／最長径の平均値が0.6以上である、アルミニウムフレーク顔料。なお、このアルミニウムフレークのうち、直徑が $10 \mu\text{m}$ 以下のアルミニウムフレークの平均アスペクト比は $8 \sim 20$ の範囲にあることが好ましい。

また、このアルミニウムフレーク顔料は、リーフィングタイプのアルミニウムフレーク顔料であって、このアルミニウムフレークの表面における脂肪酸吸着量の平均値は $0.0008 \sim 0.002 \text{ mol/cm}^2$ であることが望ましい。

【選択図】 なし

特願 2003-058340

出願人履歴情報

識別番号 [399054321]

1. 変更年月日  
[変更理由]

1999年10月 8日

名称変更

住所変更

住 所  
氏 名

大阪府大阪市中央区久太郎町三丁目6番8号

東洋アルミニウム株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**